

**PCT**  
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro  
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)



(4)

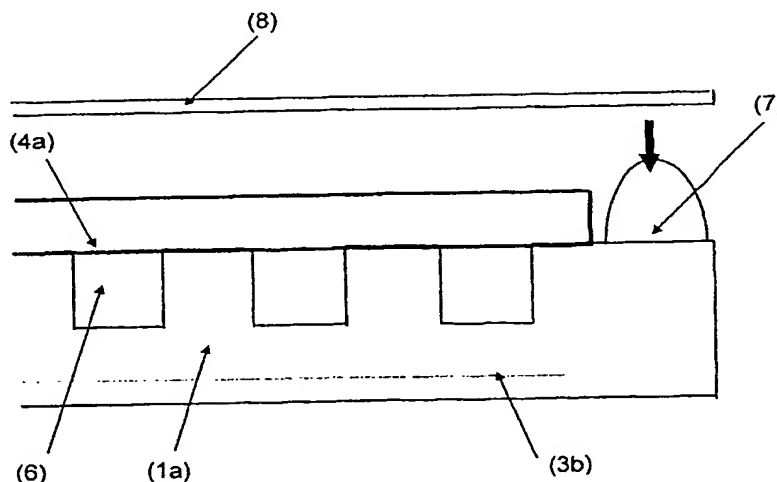
<p>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>H01M 4/00</b></p>	<p><b>A2</b></p>	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 00/02279</b></p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 13. Januar 2000 (13.01.00)</p>		
<table style="width: 100%;"> <tr> <td style="width: 50%; vertical-align: top;"> <p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/01890</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 30. Juni 1999 (30.06.99)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 198 29 142.6      30. Juni 1998 (30.06.98)      DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MANHATTAN SCIENTIFICS, INC. [US/US]; Olympic Tower, Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York, NY 10022 (US).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Petra [DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE).</p> <p>(74) Anwalt: RIEDERER VON PAAR, Anton; Lederer, Keller &amp; Riederer, Postfach 26 64, D-84010 Landshut (DE).</p> </td> <td style="width: 50%; vertical-align: top;"> <p>(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i></p> </td> </tr> </table>			<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/01890</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 30. Juni 1999 (30.06.99)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 198 29 142.6      30. Juni 1998 (30.06.98)      DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MANHATTAN SCIENTIFICS, INC. [US/US]; Olympic Tower, Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York, NY 10022 (US).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Petra [DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE).</p> <p>(74) Anwalt: RIEDERER VON PAAR, Anton; Lederer, Keller &amp; Riederer, Postfach 26 64, D-84010 Landshut (DE).</p>	<p>(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i></p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/01890</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 30. Juni 1999 (30.06.99)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 198 29 142.6      30. Juni 1998 (30.06.98)      DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MANHATTAN SCIENTIFICS, INC. [US/US]; Olympic Tower, Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York, NY 10022 (US).</p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Petra [DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE).</p> <p>(74) Anwalt: RIEDERER VON PAAR, Anton; Lederer, Keller &amp; Riederer, Postfach 26 64, D-84010 Landshut (DE).</p>	<p>(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i></p>			

(54) Title: GAS-PROOF ASSEMBLY COMPOSED OF A BIPOLAR PLATE AND A MEMBRANE-ELECTRODE UNIT OF POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE FUEL CELLS

(54) Bezeichnung: GASDICHTER VERBUND AUS BIPOLARPLATTE UND MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT VON POLY-MERELEKTROLYTMEMBRAN-BRENNSTOFFZELLEN

(57) Abstract

According to known methods, gas chambers (6) of fuel cells are sealed by applying pressure. A small space always remains between the electrode and the membrane. According to the inventive sealing method, the bipolar plate (1a) and the membrane (8)- electrode (4) unit are bonded with a curable polymer. A gas-proof assembly is obtained by applying an adhesive bead (7) on the outer periphery of the gas chamber and around the inner gas ducts. These assemblies can be stacked and bonded together according to the present invention to form a stack of polymer electrolyte fuel cells. The inventive assemblies which are composed of a bipolar plate and a membrane-electrode unit can be used in polymer electrolyte fuel cells and in corresponding electrolytic cells. These assemblies have such a small weight that they can be used in mobile devices in a particularly advantageous manner.



# (57) Zusammenfassung

Bei allen bisher bekannten Verfahren wird die Dichtigkeit der Gasräume (6) von Brennstoffzellen unter Anwendung von Anpreßdruck hergestellt. Es verbleibt immer ein kleiner Spalt zwischen Elektrode und Membran. Das erfindungsgemäße Abdichtungsverfahren verklebt jedoch Bipolarplatte (1a) und Membran (8)-Elektroden (4)-Einheit unter Verwendung eines aushärtbaren Polymers. Durch Aufbringen einer Kleberaupe (7) auf den äußeren Umfang des Gasraumes und um die inneren Gasdurchführungen entsteht ein gasdichter Verbund. Bei Stapelung und erfindungsgemäßem Verkleben dieser Verbunde erhält man einen PEM-Brennstoffzellenstack. Die erfindungsgemäßen Verbunde aus Bipolarplatte und MEA eignen sich für die Anwendung in Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen und in den entsprechenden Elektrolysezellen. Auch können sie wegen ihres geringen Gewichts in der mobilen Anwendung besonders vorteilhaft eingesetzt werden.

## LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshjan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

# **GASDICHTER VERBUND AUS BIPOLARPLATTE UND MEMBRAN - ELEKTRODEN - EINHEIT VON POLYMERELEKTROLYTMEMBRAN - BRENNSTOFFZELLEN**

5

Die vorliegende Erfindung betrifft einen gasdichten Verbund aus Bipolarplatte und Membran-Elektroden-Einheit von Polymerelektrolytmembran (PEM) - Brennstoffzellen und ein Verfahren zu seiner Herstellung.

10

Eine PEM - Brennstoffzelle besteht aus zwei Stromableiterplatten, zwei porösen, katalysierten Gasdiffusionselektroden und einer Ionenaustauschermembran, die zwischen diesen Elektroden angeordnet ist. Die Stromableiterplatten enthalten typischerweise Einrichtungen zur Zuführung und Verteilung der Reaktanden. Da die elektrische Spannung einer einzelnen Zelle für praktische Anwendungen viel zu niedrig ist, müssen eine  
15 Mehrzahl solcher Zellen in Reihe geschaltet werden. Bei dem sich daraus ergebenden Brennstoffzellenstapel bzw. -stack werden die aufeinandertreffenden Stromableiterplatten durch sog. Bipolarplatten ersetzt. Eine Bipolarplatte steht mit einer ihrer Oberflächen in elektrischem Kontakt mit der Anode einer Zelle des Stapels, während die  
20 gegenüberliegende Oberfläche mit der Kathode der benachbarten Zelle kontaktiert ist. Die Funktion der Bipolarplatten liegt zum einen im Durchleiten des Stroms durch den Stack, zum anderen im Trennen der Reaktionsgase. Auch weisen sie meistens Gasführungsstrukturen z.B. ein Kanalsystem zur besseren Verteilung der Reaktionsgase im Anoden- und Kathodenraum auf.

25 Durch Zuführung des typischen Reaktionsgases Wasserstoff an die Anodenseite der Brennstoffzelle werden in der Katalysatorschicht, die den Teil der Anode ausmacht, der mit der Ionenaustauschermembran direkt in Berührung steht, Kationen gebildet und gleichzeitig Elektronen an die Elektronen leitende Anode abgegeben. Als Oxidationsmittel wird typischerweise Sauerstoff (oder Luft) der Kathodenseite der Zelle zugeführt.

30 Durch Aufnahme der durch die Ionenaustauschermembran diffundierten Wasserstoffionen und der durch einen äußeren Stromkreis von der Anode zur Kathode geführten Elektronen wird das Reaktionsgas Sauerstoff reduziert. Diese Reaktion läuft ebenfalls in einer Katalysatorschicht, die den die Membran kontaktierenden Teil der Kathode ausmacht, ab. In den bevorzugten Anwendungsfällen ist die Konzentration des Sauerstoffs in der Luft ausreichend. Als Reaktionsprodukt entsteht Wasser. Die Reaktion-  
35 senthalpie wird in Form von elektrischer Energie und Abwärme frei. Die Einheit aus

Membran und Elektroden, einschließlich der jeweiligen Katalysatorschichten, wird als Membran-Elektroden-Einheit (im folgenden MEA - Membrane Electrode Assembly ) bezeichnet. Ob zu den Elektroden Anteile der Gasdiffussionsschicht hinzuzurechnen sind oder ob nur der Katalysator die Elektroden bildet, ist in der Literatur nicht einheitlich geregelt. Im folgenden wird bei einer für das Verständnis notwendigen Unterscheidung gesondert darauf hingewiesen.

Ein wesentliches Problem bei der Konstruktion von Brennstoffzellenstacks ist die dauerhafte Abdichtung des Anodenraums. Aufgrund der hohen Reaktionsfreudigkeit von Wasserstoff ist dies neben guter Energieausnutzung auch aus Sicherheitsgründen notwendig. Wird Luft oder Sauerstoff mit wesentlichem Überdruck verwendet, so muß auch der Kathodenraum abgedichtet werden.

Ein Verfahren, die Gasräume von PEM - Brennstoffzellen abzudichten, besteht in der Fertigung von Dichtungen aus Elastomermaterialien und dem Anordnen dieser Dichtungen zwischen der Polymerelektrolytmembran und den Bipolarplatten, die aus gasdichtem Graphitmaterialien hergestellt sind. Dabei wird die Dichtung in, auf komplizierte Art und Weise hergestellte, Schlitze eingelegt, die eigens dafür in einem Kohlefaserpapier, das als Gasdiffussionsschicht dient, vorgesehen sind. Eine solche Anwendung findet sich beispielsweise in der US - PS 5,284,718.

Die Dichtung kann auch aus einer in der Bipolarplatte integrierten Erhebung, die durch einen Prägevorgang hergestellt ist, gebildet werden. Die Bipolarplatten müssen dann aber aus einem elastischem, plastisch verformbaren und gasdichten Material, z.B. aus Graphitfolien hergestellt sein. Auch hier benötigt die Dichtung erheblichen Druck für die Ausbildung der Dichtwirkung, der von den Spannplatten ausgeübt werden muß. Ein derartiges Verfahren zeigt z.B. DE - OS 195 42 475 A1.

Ein weiteres Abdichtungsverfahren stellt DE - PS 44 42 285 C1 vor, in dem die negative Polplatte, die Membran, die positive Polplatte und zwei Dichtungen am Rand durch ein Rahmenelement gasdicht und elektrisch isolierend miteinander verklemt werden. Das aus Metall bestehende Rahmenelement kann Teil einer Polplatte sein und besitzt einen U-Profil-Querschnitt. Durch Aufweitung dieses U - Profils bei der Montage entsteht der Anpreßdruck.

Auch ist es möglich, wie EP - PS 0 690 519 A1 zeigt, eine Einheit aus einer Flächen-  
dichtung und der Ionenaustauschermembran herzustellen. Die aus porösem Polyte-  
trafluorethylen bestehende Dichtung ist auf beiden Seiten der Membran angebracht  
und umgibt den mit Katalysator beschichteten Teil der Membran als eine Art Rahmen.

5

Alle bisher bekannten Abdichtungsverfahren weisen folgende Nachteile auf:

Bei Verwendung von Elastomerdichtungen werden häufig dünne Membranen durch die  
Längenänderung des Elastomers (z.B. Silikon ) beim Zusammenspannen zerrissen.

10

Aufgrund der unterschiedlichen, verwendeten Materialien bei Bipolarplatten und Dich-  
tung besteht auch die Gefahr, daß es bei Inbetriebnahme zu Undichtigkeiten kommt, da  
sich bei Erwärmung die verschiedenen Materialien unterschiedlich ausdehnen.

15

Viele andere Dichtungssystemen benötigen am Dichtrand erheblichen Anpreßdruck,  
um die notwendige Dichtwirkung zu erreichen. Dies hat zur Folge, daß die Spannplat-  
ten größer dimensioniert werden müssen und somit den gesamten Stack schwerer ma-  
chen, was nachteilig für die mobile Anwendung ist. Bei Verwendung von Klemmele-  
menten am Rahmen entsteht zusätzliches Gewicht durch relativ dickwandige Metalltei-  
le.

20

Die Abstimmung zwischen der Dicke der Elektroden und der Bipolarplatten und der  
Dicke der Dichtung ist äußerst schwierig, da beide, Elektroden und Dichtung, geeigne-  
ten Anpreßdruck benötigen, aber unterschiedliche Elastizitäten aufweisen. Die tollerier-  
baren Dickenabweichungen sind sehr klein. Diese Anforderung führt zu aufwendigen  
Herstellungsverfahren, die sehr kostenintensiv sind.

25

Bei allen bekannten Verfahren gibt es nach Zusammenbau einen kleinen Spalt zwi-  
schen Elektrode und Membran, denn die Dichtung muß größer als die Elektrode aus-  
geschnitten werden. Daraus folgt eine erhöhte Gefahr von Rißbildung in der Membran,  
besonders bei stark quellenden und sehr dünnen Membranen wie z.B. bei Membranen  
aus sulfoniertem Polyetherketon.

30

Nachteilig ist bei den meisten Systemen ferner, daß die Dichtigkeit erst beim Zusam-  
menbau der einzelnen Brennstoffzellen zu einem Stack geprüft werden kann. Die Or-  
tung von Undichtigkeiten ist somit nur im kompletten Stack möglich, nicht in den einzel-  
nen Zellen. Zur Qualitätssicherung bedarf es dadurch der Konzeption aufwendiger  
Verfahren.

Mit der vorliegenden Erfindung können alle oben aufgeführten Nachteile vermieden werden.

Aufgabe der Erfindung ist es, einen gasdichten Verbund aus MEA und der Wasserstoffseite einer Bipolarplatte bereitzustellen.

Weiterhin ist es Aufgabe der Erfindung, ein einfaches, kostengünstiges Verfahren zur Herstellung eines derartigen Verbundes aufzuzeigen.

Zusätzlich ist es Aufgabe der Erfindung, einen vollständigen Brennstoffzellenstapel aus erfindungsgemäßen Einheiten von MEA's und Bipolarplatten darzulegen, der Gasdurchführungen durch die Bipolarplatte und auch einen abgedichteten Kathodenraum enthält.

Aufgabe der Erfindung ist es darüberhinaus, ein Verfahren zur Herstellung dieses Brennstoffzellenstapels anzugeben.

Eine Lösung dieser Aufgaben bietet der gasdichte Verbund aus Membran-Elektroden-Einheit und Bipolarplatten gemäß Anspruch (1), der Brennstoffzellenstack nach Anspruch (12), das Verfahren zur Herstellung des Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch (15) und das Verfahren zur Herstellung des Brennstoffzellenstack nach Anspruch (26).

Bevorzugte Weiterbildungen der Erfindung finden sich in den jeweiligen Unteransprüchen.

Der gasdichte Verbund aus Membran-Elektroden-Einheit und Bipolarplatte wird durch ein technisch unkompliziertes Klebverfahren erstellt. Dies geschieht erfindungsgemäß dadurch, daß als Dichtmaterial ein oder mehrere aushärtbare Polymere (Klebstoffe) verwendet werden. Um auf einfache Weise einen gasdichten Verbund aus Bipolarplatte und Membran herstellen zu können, muß der Kleber auf der Bipolarplatte und auf der Membran, die evtl. mit einem Katalysator versehen ist, haften. Die Wirksamkeit der Edelmetallkatalysatoren und die Leitfähigkeit der Membran darf weder während des Aushärtungsvorgangs noch im ausgehärtetem Zustand durch flüchtige Stoffe beeinträchtigt werden.

Es existieren jedoch einige, erstaunlicherweise sogar handelsübliche Klebstoffe, die diese Anforderungen erfüllen. Bei Verwendung von Metallbipolarplatten eignen sich

bevorzugt Silikone als Klebedichtmasse. Sie haften gut auf nahezu allen Metallen und auf den gängigen perfluorierten oder nichtfluorierten, evtl. auch mit Katalysator versehenen Membrantypen. Werden Graphitbipolarplatten oder Composites aus Graphit und Polymeren eingesetzt, so kann entweder Epoxidharz mittlerer Viskosität oder wiederum Silikon als Klebedichtung verwendet werden. Im letzteren Fall ist allerdings auf der Bipolarplatte eine Haftvermittlungsschicht aus einem dünnen Epoxidharzfilm auf der möglichst aufgerauhten Oberfläche der Bipolarplatte anzubringen. Dieser Epoxidharzfilm kann mittels Siebdruck, Sprühverfahren oder Pinseln aufgebracht werden. Ist ein besonders dünner Film erwünscht, so kann z.B. das zweikomponentige Epoxidharzprodukt Körapox 439 (Kömmerling GmbH) zuvor mit niederen Alkoholen z.B. Ethanol verdünnt werden.

Für alle Arten von Bipolarplatten eignen sich zur Verklebung besonders die Produkte Elastosil E 41 und E 43 (Wacker Chemie AG). Aufgrund von massiven Vergiftungerscheinungen an den aktiven Zentren von Katalysator und Membran ist das Zweikomponentige Epoxidharz Stykast W19 (Grace N.V., Belgien) nicht geeignet. Die Viskosität des Klebers liegt zwischen 10.000 mPas und 500.000 mPas, bevorzugt zwischen 60.000 mPas und 350.000 mPas. Eine leicht thixotrope Konsistenz kann von Vorteil sein.

Zunächst soll die Abdichtung des Wasserstoffgasraumes dargestellt werden, die bevorzugt durchgeführt wird. Bei der Herstellung eines gasdichten Verbundes von Bipolarplatte und Membranelektroden - Einheit muß unterschieden werden, ob im Aufbau der PEM - Brennstoffzelle eine komplette MEA verwendet wird, d.h. eine Membran mit zwei Katalysatorschichten und mit mindestens der Anoden - Gasdiffusionsschicht oder ob es sich um katalysierte Membranen mit aufgelegter Anoden - Gasdiffusionsschicht handelt. Im folgenden wird zunächst die Vorgehensweise bei Auswahl einer katalysierten Membranen mit nur aufgelegter Anoden - Gasdiffusionsschicht beschrieben. Die dabei gemachten Angaben zur Breite des Dichtrandes, zur Dicke der Gasdiffusionsschicht und zur Überlappung zwischen Gasdiffusionsschicht und Bipolarplatte gelten bevorzugt für alle, noch darzustellenden Klebverfahren.

Bevorzugt verwendet man, wie in Fig. 1 dargestellt, eine Bipolarplatte (1) mit Gasdurchführungsbohrungen für das Reduktionsmittel Wasserstoff (2a) und evtl. das Oxidationsmittel Sauerstoff oder Luft (2b), mit Gasverteilungsstruktur z.B. einer Kanalstruktur (3) und umlaufendem, nicht strukturierten Dichtrand, dessen Breite zwischen

0.1 mm und 10 mm, bevorzugt zwischen 1 mm und 5 mm, besonders bevorzugt zwischen 2 mm und 3 mm liegt. Bevorzugt, aber nicht notwendig, liegen die Erhebungen der Kanalstruktur auf derselben Ebene wie der Dichtrand. Die zu verwendende Gasdiffussionsschicht (4) mit typischer Dicke zwischen 0.1 mm und 0.5 mm wird auf die Bipolarplatte positioniert und mit einer Haltevorrichtung fixiert. Besonders vorteilhaft kann die Positionierung mit Hilfe von Stiften in den Gasdurchführungen durch Bipolarplatte und Gasdiffussionsschicht erfolgen. Die Gasdiffussionsschicht muß dazu an den der Bipolarplatte entsprechenden Stellen Aussparungen aufweisen. Bevorzugt wird eine Gasdiffussionsschicht verwendet, die etwas größer ist als der mit Kanalstruktur versehene Bereich der Bipolarplatte. Die Überlappung zwischen Gasdiffussionsschicht und Bipolarplatte (5) liegt zwischen 0.1 mm und 5 mm, bevorzugt zwischen 0.3 mm und 0.8 mm. Nach Auswahl eines geeigneten Klebers zur Abdichtung des Wasserstoffraums (6) wird, wie in Fig. 2 dargestellt, eine Kleberaupe (7), die bevorzugt höher ist als die Gasdiffusionsschicht des Wasserstoffraums (4a) auf den Teil der Bipolarplatte aufgetragen, dessen Oberfläche mit der Anode in Kontakt steht (1a) und deren Gasverteilungsstruktur für Sauerstoff oder Luft (3a) hier nur angedeutet ist. Das Volumen des aufgetragenen Klebers wird bevorzugt so bemessen, daß der Spalt zwischen der Oberfläche der Gasdiffussionsschicht und dem Dichtrand vollständig gefüllt wird. Die Kleberaupe wird mit geeigneten Dosiervorrichtungen dergestalt aufgebracht, daß sie die Oberfläche der Gasdiffussionsschicht überragt und am Dichtrand so positioniert, daß sie die Gasdiffussionsschicht gerade eben berührt oder knapp vor dieser endet. Durch Auflegen der katalysierten Membran (8) wird die Dichtraupe dann so deformiert, daß sie den gesamten Spalt zwischen Bipolarplatte und Membranunterseite füllt und der Kleber zumindest bis an die Stirnflächen der Gasdiffussionsschicht reicht und bevorzugt sogar über Distanzen von  $< 1$  mm in die Gasdiffussionsschicht eindringt. Die so aufgelegte Membran kann eben auf der Gasdiffussionsschicht liegen oder im Bereich der Dichtraupe sogar leicht erhöht sein.

Um die dünne, katalysierte Membran auf die Bipolarplatte mit Gasdiffusionsschicht und Kleberaupe eben aufzulegen, bedient man sich zweckmäßigerweise ebenfalls einer Hilfskonstruktion, nämlich eines beweglichen Vakuumspanntisches. Dieser kann ähnlich einer Bipolarplatte aus einem Kanalsystem bestehen, das durch ein poröses Kohlfaserpapier abgedeckt ist. Durch Erzeugung eines Unterdrucks in diesem Kanalsystem kann eine Membran eben aufgespannt und zusammen mit dem Vakuumspanntisch auf die Bipolarplatte mit Gasdiffusionsschicht und Kleberaupe aufgesetzt werden. Bevor-



zugt enthält auch die Membran und evtl. der Vakuumspanntisch an denselben Positionen wie die Bipolarplatte Bohrungen, die später zur Gasdurchführung durch die einzelnen Zellen eines Stacks dienen.

Anschließend muß der Kleber je nach Art seiner Zusammensetzung unter den entsprechenden Bedingungen, beispielsweise bei leichter Temperaturerhöhung oder bei Raumtemperatur, ausgehärtet werden.

Nun ist es möglich, den so hergestellten Verbund aus Bipolarplatte und Membran auf seine Dichtigkeit zu prüfen und bei Bedarf auch eine Funktionsprüfung dieser einzelnen Brennstoffzelle vorzunehmen. Die Funktionsprüfung erfolgt bevorzugt dadurch, daß der Verbund aus Bipolarplatte und MEA mit einer geeigneten Luftführungsstruktur aus Graphit zusammengespannt wird und die somit vollständige Einzelzelle zumindest mit Luft nahe dem Umgebungsdruck betrieben werden kann.

Falls eine Membran, auf der die Gasdiffusionsschichten haften, verwendet werden soll, existiert ebenfalls eine Möglichkeit der Abdichtung des Wasserstoffgasraums zwischen Bipolarplatte und MEA. Die MEA muß dazu einen freien, d.h. nicht von der Gasdiffusionsschicht bedeckten Rand aufweisen. Die Kleberaupe wird dann nicht auf die Bipolarplatte, sondern bevorzugt direkt auf die MEA, die vorteilhaft auf einem geeigneten Vakuumspanntisch aufgespannt ist, aufgetragen. Die so vorbereitete MEA kann dann zusammen mit dem Vakuumspanntisch auf die Bipolarplatte aufgesetzt werden.

Wie in **Fig. 3** dargestellt ist, können Gasdurchführungen für das Oxidationsmittel Sauerstoff oder Luft (**2b**) durch den Teil der Bipolarplatte, dessen Oberfläche mit der Anode in Kontakt steht (**1a**) analog, wie für die beiden Arten von MEA bereits beschrieben, gegen den Wasserstoffraum (**6**) gedichtet werden.

Um aus mehreren erfindungsgemäßen Einheiten aus Bipolarplatte und MEA einen Brennstoffzellenstack herzustellen, der auch mit Sauerstoff oder Luft unter Überdruck betrieben werden kann, können diese Einheiten miteinander luft- und wasserstoffdicht analog dem obigen, erfindungsgemäßen Verfahren folgendermaßen (vgl **Fig 4** und **Fig. 5**) verklebt werden:

Bevorzugt wird zunächst ein Verbund aus Bipolarplatte und MEA einschließlich kathodenseitiger Gasdiffusionsschicht (**4b**), die am Rand und um die Wasserstoffdurchführung Membranfläche für eine Kleberaupe freiläßt, bereitgestellt. Eine Kleberaupe (**7**)

wird, wie oben beschrieben, bevorzugt am Umfang der Membran **Fig. 4)** und um die Wasserstoffdurchführungen (**Fig. 5)** aufgebracht. Eine weitere Einheit aus Bipolarplatte und MEA wird mit dem Teil der Bipolarplatte, dessen Oberfläche mit der Kathoden in Kontakt steht (**1b)**, auf die Kleberaupe aufgesetzt. Der Kleber wird anschließend unter  
5 geeigneten Bedingungen ausgehärtet. Die Kleberaupe am Umfang der Membran dichtet die evtl. unter Überdruck stehende Luft gegen den Außenraum ab, während die Kleberaupe um die Wasserstoffdurchführung verhindert, daß Wasserstoff in den Kathodenraum eindringt.

- 10 Bei Betrieb mit Luft nahe dem Umgebungsdruck kann auf die, in Fig. 4 dargestellte Abdichtung am äußeren Umfang des Luftraumes verzichtet werden.

Falls Durchführungsbohrungen für Kühlmedien oder Spannelemente vorgesehen sind, können diese gegen Anoden- und Kathodenraum nach Maßgabe von Fig. 3 und zu-  
15 gleich Fig. 5 abgedichtet werden.

Die Vorteile des erfindungsgemäßen Klebverfahrens liegen in der Vermeidung von Spalten zwischen Dichtung und Gasdiffussionsschichten. Weiterhin bedarf es keines großen Anpreßdrucks, da dieser durch die Adhäsionskräfte der Klebung ersetzt wird.  
20 Weder Dichtung noch Elektroden müssen mit geringen Maßtoleranzen gefertigt, auch der Querschnitt der Gaszuführungen kann beliebig gewählt werden. Dichtetests und zumindest Funktionstest mit Luft unter Umgebungsdruck sind für die Einzelzellen möglich. Es entsteht nahezu kein zusätzliches Gewicht durch die Klebedichtung. Eine kostengünstige, industrielle Fertigung ist somit möglich.

25

30

**BEZUGSZEICHENLISTE**

- (1) Bipolarplatte
- (1a) Teil der Bipolarplatte, dessen Oberfläche mit der Anode in Berührung steht
- 5 (1b) Teil der Bipolarplatte, dessen Oberfläche mit der Kathode in Berührung steht
- (2) Gasdurchführungsbohrungen
- (2a) Gasdurchführung für das Reduktionsmittel Wasserstoff
- (2b) Gasdurchführung für das Oxidationsmittel Sauerstoff oder Luft
- (3) Gasverteilungsstruktur z.B. Kanalstruktur
- 10 (3a) Gasverteilungsstruktur für Wasserstoff
- (3b) Gasverteilungsstruktur für Sauerstoff
- (4) Gasdiffussionsschicht
- (4a) Gasdiffussionsschicht des Wasserstoffraums
- (4b) Gasdiffussionsschicht des Sauerstoffraums
- 15 (5) Überlappung zwischen Gasdiffussionsschicht und Bipolarplatte
- (6) Wasserstoffraum
- (7) Kleberaupe
- (8) Membran

20

25

30

## ANSPRÜCHE

1. Verbund aus Bipolarplatte und MEA

**dadurch gekennzeichnet, daß**

5 der freie, nicht von Gasdiffusionsschichten bedeckte katalysierte oder nicht katalysierte Membranrand einer MEA mit der Bipolarplatte gasdicht verklebt ist.

2. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch (1)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

10 die Wasserstoffseite der Bipolarplatte mit der Anodenseite der MEA verklebt ist

3. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (2)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

15 der Kleber in Form einer Dichtraupe aufgetragen wurde die höher ist als die Gasdiffusionsschicht.

4. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch (3)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

20 das Volumen der aufgetragenen, nicht ausgehärteten Dichtraupe so bemessen wurde , daß sie genau den Klebespalt füllt.

5. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (4)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

25 das Klebematerial 0.2 mm bis 1 mm die Gasdiffusionsschicht durchdringt.

6. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (5)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Klebung mit einem aushärtbaren Silikon oder einem Epoxydharz durchgeführt ist.

30 7. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (6)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Bipolarplatte und/oder die Membran im Bereich des Dichtrandes mit einem Haftvermittler vorbehandelt ist.

8. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (7)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Gasdiffusionsschicht den Dichtrand der Bipolarplatte um 0.1 bis 5 mm überlappt

5

9. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (8)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

Dichtrand und Oberfläche der Gasverteilungsstruktur der Bipolarplatte auf einer Ebene liegen.

10

10. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (9)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

zur Positionierung der MEA mit oder ohne Gasdiffusionsschichten auf die Bipolarplatte ein Vakuumspanntisch verwendet wurde.

15

11. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (10)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

Anoden- und/oder Kathodengasdurchführungen vorgesehen sind, von denen mindestens eine, welche das Gas führt, das nicht in den Gasraum des Verbundes eindringen

20

soll durch Klebung abgedichtet ist.

12. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA

**dadurch gekennzeichnet, daß**

der freie, nicht von Gasdiffusionsschichten bedeckte katalysierte oder nicht katalysierte

25

Membranrand einer MEA mit der Bipolarplatte gasdicht verklebt wird.

13. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch (12)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

30

die Wasserstoffseite der Bipolarplatte mit der Anodenseite der MEA verklebt wird.

14. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (13)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

der Kleber in Form einer Dichtraupe aufgetragen wird, die höher ist als die Gasdiffusionsschicht.

- 5 15. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (14)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

das Volumen der aufgetragenen, nicht ausgehärteten Dichtraupe so bemessen wird, daß sie genau den Klebespalt füllt.

- 10 16. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (15)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

das Klebematerial 0.2 mm bis 1 mm in die Gasdiffusionsschicht eindringt.

- 15 17. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (16)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Klebung mit einem aushärtbaren Silikon oder einem Epoxydharz durchgeführt wird.

- 20 18. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (17)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Bipolarplatte und/oder die Membran im Bereich des Dichtrandes mit einem Haftvermittler vorbehandelt wird.

- 25 19. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (18)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Gasdiffusionsschicht den Dichtrand der Bipolarplatte um 0.1 bis 5 mm überlappt.

- 30 20. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (19)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

Dichtrand und Oberfläche der Gasverteilungsstruktur der Bipolarplatte auf einer Ebene liegen.

21. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA  
5 nach einem der Ansprüche (12) bis (20)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

zur Positionierung der MEA mit oder ohne Gasdiffusionsschichten auf die Bipolarplatte ein Vakuumspanntisch verwendet wird.

- 10 22. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (21)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

Anoden- und/oder Kathodengasdurchführungen vorgesehen sind, von denen mindestens eine, welche das Gas führt, das nicht in den Gasraum des Verbundes eindringen  
15 soll Zelle durch Klebung abgedichtet wird.

23. Anwendung des Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (11) in Brennstoffzellenstacks und / oder Stacks aus Elektrolysezellen.

- 20 24. Anwendung nach Anspruch (23),

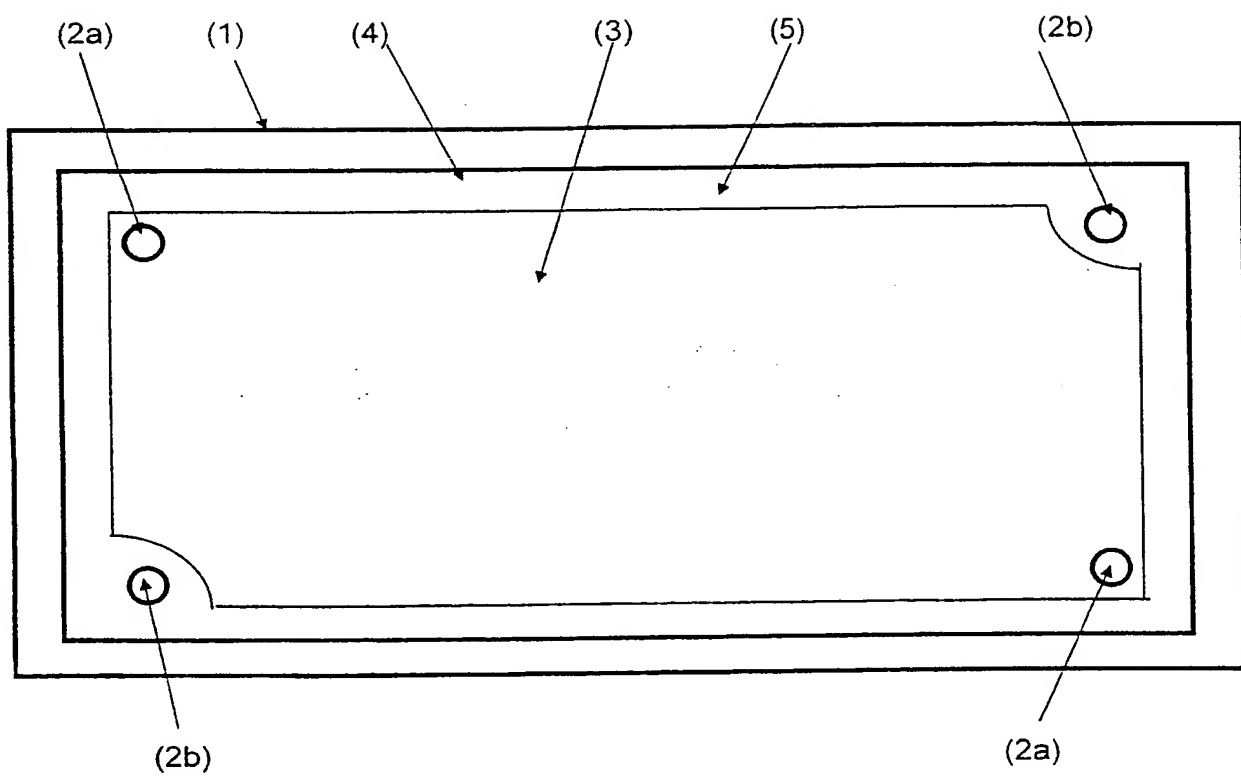
**dadurch gekennzeichnet, daß**

mehrere Verbunde aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (11) durch Stapelung elektrisch in Serie geschaltet sind.

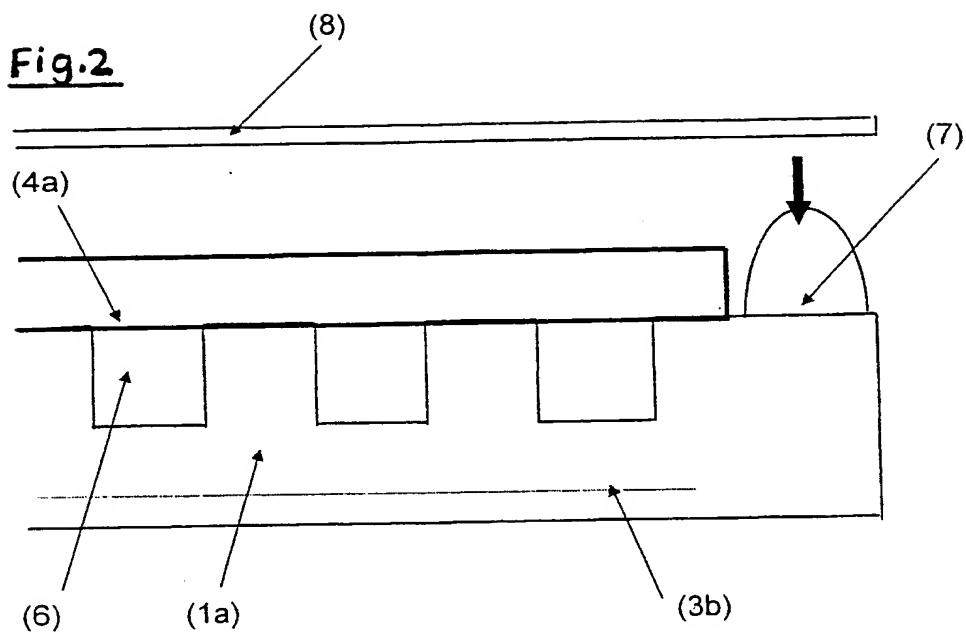
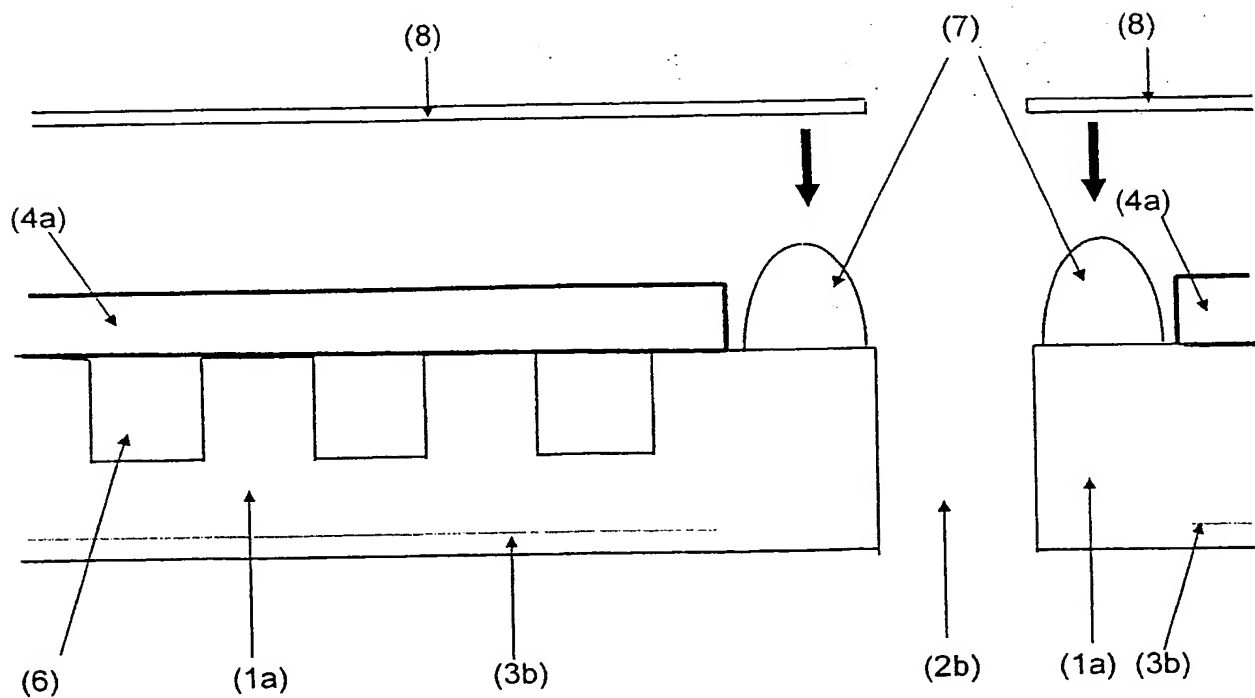
- 25 25. Anwendung nach Anspruch (23)

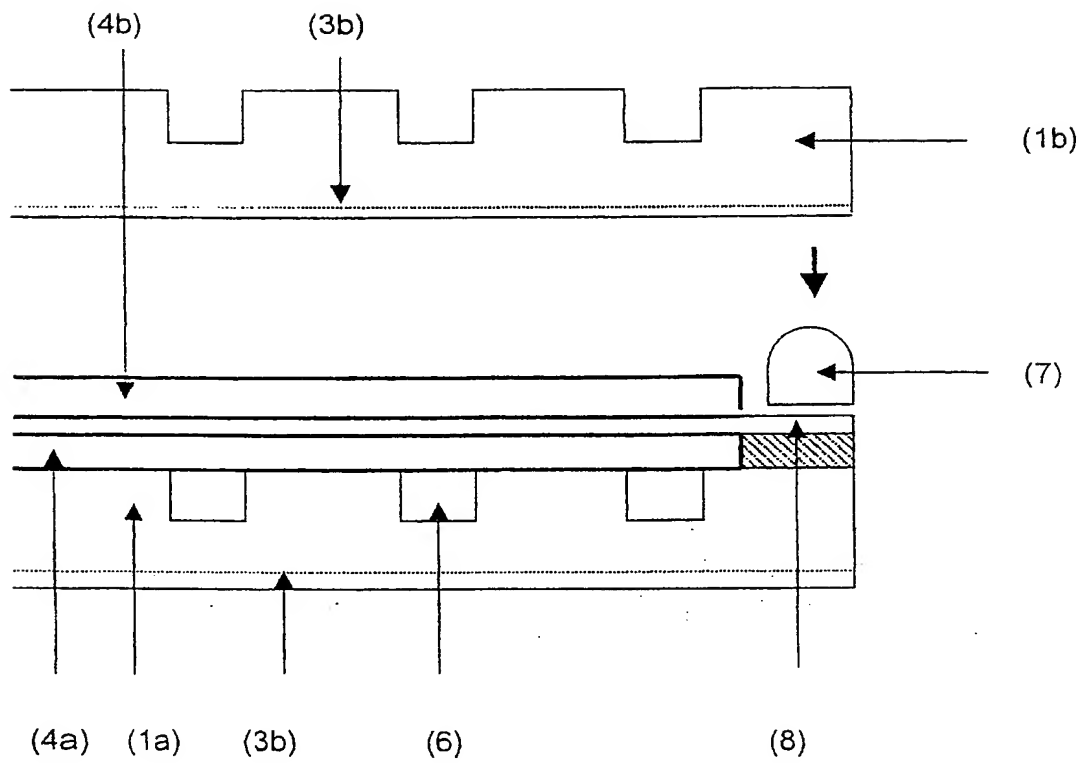
**dadurch gekennzeichnet, daß**

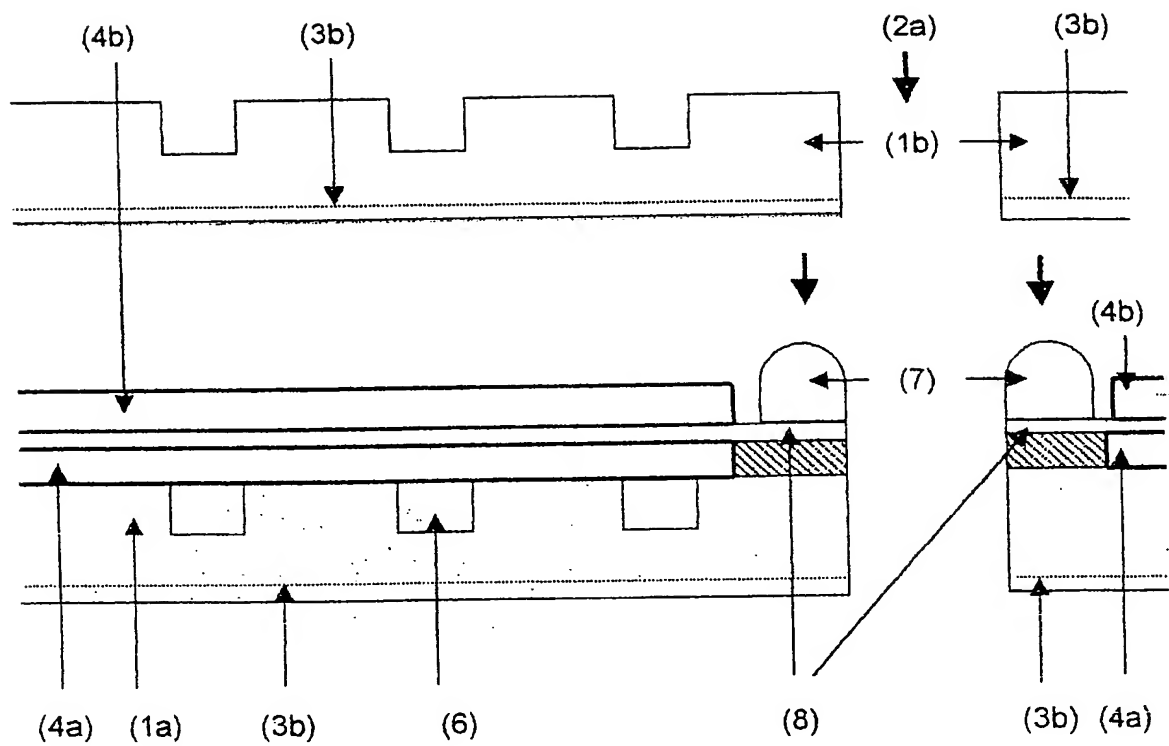
der in den Verbunden aus Bipolarplatte und MEA noch nicht gedichtete Gasraum am Umfang und/oder an den entsprechenden Gasdurchführungen wiederum an einer Seite der Bipolarplatte eines Verbundes mit der entsprechenden Seite der MEA eines zweiten Verbundes mittels des Verfahrens nach einem der Ansprüche (12) bis (22) abgedichtet wird.  
30

**Fig.1**



**Fig.2****Fig.3**

**Fig.4**

**Fig.5**





(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> : <b>H01M 8/02</b>		A3	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 00/02279</b>
		(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:	13. Januar 2000 (13.01.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/01890 (22) Internationales Anmeldedatum: 30. Juni 1999 (30.06.99) (30) Prioritätsdaten: 198 29 142.6      30. Juni 1998 (30.06.98)      DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MAN- HATTAN SCIENTIFICS, INC. [US/US]; Olympic Tower, Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York, NY 10022 (US). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Petra [DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE). (74) Anwalt: RIEDERER VON PAAR, Anton; Lederer, Keller & Riederer, Postfach 26 64, D-84010 Landshut (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht. (88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchen- berichts: 13. April 2000 (13.04.00)	
(54) Title: GAS-PROOF ASSEMBLY COMPOSED OF A BIPOLAR PLATE AND A MEMBRANE-ELECTRODE UNIT OF POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE FUEL CELLS (54) Bezeichnung: GASDICHTER VERBUND AUS BIPOLARPLATTE UND MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT VON POLY- MERELEKTROLYTMEMBRAN-BRENNSTOFFZELLEN (57) Abstract <p>According to known methods, gas chambers (6) of fuel cells are sealed by applying pressure. A small space always remains between the electrode and the membrane. According to the inventive sealing method, the bipolar plate (1a) and the membrane (8)- electrode (4) unit are bonded with a curable polymer. A gas-proof assembly is obtained by applying an adhesive bead (7) on the outer periphery of the gas chamber and around the inner gas ducts. These assemblies can be stacked and bonded together according to the present invention to form a stack of polymer electrolyte fuel cells. The inventive assemblies which are composed of a bipolar plate and a membrane-electrode unit can be used in polymer electrolyte fuel cells and in corresponding electrolytic cells. These assemblies have such a small weight that they can be used in mobile devices in a particularly advantageous manner.</p>			

## (57) Zusammenfassung

Bei allen bisher bekannten Verfahren wird die Dichtigkeit der Gasräume (6) von Brennstoffzellen unter Anwendung von Anpreßdruck hergestellt. Es verbleibt immer ein kleiner Spalt zwischen Elektrode und Membran. Das erfindungsgemäße Abdichtungsverfahren verklebt jedoch Bipolarplatte (1a) und Membran (8)-Elektroden (4)-Einheit unter Verwendung eines aushärtbaren Polymers. Durch Aufbringen einer Kleberaupe (7) auf den äußeren Umfang des Gasraumes und um die inneren Gasdurchführungen entsteht ein gasdichter Verbund. Bei Stapelung und erfindungsgemäßem Verkleben dieser Verbunde erhält man einen PEM-Brennstoffzellenstack. Die erfindungsgemäßen Verbunde aus Bipolarplatte und MEA eignen sich für die Anwendung in Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen und in den entsprechenden Elektrolysezellen. Auch können sie wegen ihres geringen Gewichts in der mobilen Anwendung besonders vorteilhaft eingesetzt werden.

## LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/DE 99/01890

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01M8/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 03, 27 February 1998 (1998-02-27) -&amp; JP 09 289029 A (TANAKA KIKINZOKU KOGYO KK), 4 November 1997 (1997-11-04) abstract -&amp; DATABASE WPI Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 1998-030061 XP002128385 abstract -&amp; CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 128, no. 5, 2 February 1998 (1998-02-02) Columbus, Ohio, US; abstract no. 50707, YANAGIHARA: "Structure of sealings and cooling means for solid polymer electrolyte fuel cells and fuel cell stacks" -/--</p>	<p>1,2,12, 13,23-25</p>

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 January 2000

Date of mailing of the international search report

03/02/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/DE 99/01890

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	XP002128384 abstract	6, 17
P, X	EP 0 918 362 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 26 May 1999 (1999-05-26)  column 7, line 55 -column 8, line 7; claims 1,5,6; figure 2 column 9, line 1 - line 22	1, 2, 6, 12, 13, 17, 23-25
P, Y	---	6, 17
P, X	GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 30 September 1998 (1998-09-30)  claims 1,2,4-10,12,16; figures 2,3 page 17, line 13 - line 20 page 10, line 8 page 11, last paragraph -page 15, paragraph 2 page 10, line 16 - line 18	1-6, 8, 9, 11-17, 19, 20, 22-25
Y	---	6, 17
X	WO 94 25995 A (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ;LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 10 November 1994 (1994-11-10) page 16, line 23 -page 17, line 27; figures 4,7 page 22, line 30 -page 23, line 6	1, 2, 12, 13, 23-25
P, X	WO 98 33225 A (MAGNET MOTOR GMBH ;KOSCHANY ARTHUR (DE); SCHWESINGER THOMAS (DE)) 30 July 1998 (1998-07-30)  claims 15-17, 19, 20 page 13, paragraph 1 -page 14, paragraph 1; figure 5 page 15, line 24 -page 16, line 7 page 18, line 17 - line 20 page 19, last paragraph -page 20, paragraph 1; figure 10	1, 2, 5, 6, 9, 11-13, 16, 17, 20, 22-25
P, Y	---	6, 17
P, X	DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC) 10 December 1998 (1998-12-10) claims 1,3,4; figure 3 column 5, line 5 - line 24; figure 3  --- -/--	1



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/01890

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1995, no. 06, 31 July 1995 (1995-07-31) -& JP 07 065847 A (KANSAI ELECTRIC POWER CO INC:THE;OTHERS: 01), 10 March 1995 (1995-03-10) abstract ---	6
A	EP 0 331 128 A (INT FUEL CELLS CORP) 6 September 1989 (1989-09-06) column 5, line 40 -column 6, line 26; claim 3; figure 3 ---	10,21
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 008, no. 135 (E-252), 22 June 1984 (1984-06-22) -& JP 59 046767 A (TOKYO SHIBAURA DENKI KK), 16 March 1984 (1984-03-16) abstract ---	1
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1997, no. 08, 29 August 1997 (1997-08-29) -& JP 09 097619 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD), 8 April 1997 (1997-04-08) abstract ---	1
A	US 5 187 025 A (KELLAND JAMES W ET AL) 16 February 1993 (1993-02-16) column 3, line 1 - line 15; figure 2 -----	1

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.  
PCT/DE 99/01890

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 09289029 A	04-11-1997	NONE	
EP 0918362 A	26-05-1999	JP 11154522 A	08-06-1999
GB 2323700 A	30-09-1998	DE 19713250 A	15-10-1998
		CA 2233440 A	29-09-1998
WO 9425995 A	10-11-1994	DE 4314745 C	08-12-1994
		DE 59404537 D	11-12-1997
		EP 0698300 A	28-02-1996
		JP 8509571 T	08-10-1996
		US 5733678 A	31-03-1998
WO 9833225 A	30-07-1998	DE 19703214 C	05-11-1998
		AU 6617298 A	18-08-1998
		EP 0966770 A	29-12-1999
DE 19823880 A	10-12-1998	FR 2764122 A	04-12-1998
		GB 2326017 A	09-12-1998
		SE 9801942 A	04-12-1998
JP 07065847 A	10-03-1995	NONE	
EP 0331128 A	06-09-1989	US 4786568 A	22-11-1988
		CA 1309132 A	20-10-1992
		DK 95589 A	02-09-1989
		JP 1283771 A	15-11-1989
		JP 2842606 B	06-01-1999
		US 4845840 A	11-07-1989
JP 59046767 A	16-03-1984	NONE	
JP 09097619 A	08-04-1997	NONE	
US 5187025 A	16-02-1993	NONE	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01890

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 H01M8/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 03, 27. Februar 1998 (1998-02-27) -&amp; JP 09 289029 A (TANAKA KIKINZOKU KOGYO KK), 4. November 1997 (1997-11-04) Zusammenfassung -&amp; DATABASE WPI Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 1998-030061 XP002128385 Zusammenfassung -&amp; CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 128, no. 5, 2. Februar 1998 (1998-02-02) Columbus, Ohio, US; abstract no. 50707, YANAGIHARA: "Structure of sealings and cooling means for solid polymer electrolyte fuel cells and fuel cell stacks"</p> <p style="text-align: right;">-/--</p>	1,2,12, 13,23-25



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

21. Januar 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

03/02/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01890

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	XP002128384 Zusammenfassung	6,17
P,X	--- EP 0 918 362 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 26. Mai 1999 (1999-05-26)  Spalte 7, Zeile 55 - Spalte 8, Zeile 7; Ansprüche 1,5,6; Abbildung 2 Spalte 9, Zeile 1 - Zeile 22	1,2,6, 12,13, 17,23-25
P,Y	---	6,17
P,X	GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 30. September 1998 (1998-09-30)  Ansprüche 1,2,4-10,12,16; Abbildungen 2,3 Seite 17, Zeile 13 - Zeile 20 Seite 10, Zeile 8 Seite 11, letzter Absatz -Seite 15, Absatz 2 Seite 10, Zeile 16 - Zeile 18	1-6,8,9, 11-17, 19,20, 22-25
Y	---	6,17
X	WO 94 25995 A (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ;LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 10. November 1994 (1994-11-10) Seite 16, Zeile 23 -Seite 17, Zeile 27; Abbildungen 4,7 Seite 22, Zeile 30 -Seite 23, Zeile 6	1,2,12, 13,23-25
P,X	--- WO 98 33225 A (MAGNET MOTOR GMBH ;KOSCHANY ARTHUR (DE); SCHWESINGER THOMAS (DE)) 30. Juli 1998 (1998-07-30)  Ansprüche 15-17,19,20 Seite 13, Absatz 1 -Seite 14, Absatz 1; Abbildung 5 Seite 15, Zeile 24 -Seite 16, Zeile 7 Seite 18, Zeile 17 - Zeile 20 Seite 19, letzter Absatz -Seite 20, Absatz 1; Abbildung 10	1,2,5,6, 9,11-13, 16,17, 20,22-25
P,Y	---	6,17
P,X	DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC) 10. Dezember 1998 (1998-12-10) Ansprüche 1,3,4; Abbildung 3 Spalte 5, Zeile 5 - Zeile 24; Abbildung 3 ---	1
	--- -/--	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01890

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1995, no. 06, 31. Juli 1995 (1995-07-31) -& JP 07 065847 A (KANSAI ELECTRIC POWER CO INC:THE;OTHERS: 01), 10. März 1995 (1995-03-10) Zusammenfassung ---	6
A	EP 0 331 128 A (INT FUEL CELLS CORP) 6. September 1989 (1989-09-06) Spalte 5, Zeile 40 -Spalte 6, Zeile 26; Anspruch 3; Abbildung 3 ---	10,21
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 008, no. 135 (E-252), 22. Juni 1984 (1984-06-22) -& JP 59 046767 A (TOKYO SHIBAURA DENKI KK), 16. März 1984 (1984-03-16) Zusammenfassung ---	1
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1997, no. 08, 29. August 1997 (1997-08-29) -& JP 09 097619 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD), 8. April 1997 (1997-04-08) Zusammenfassung ---	1
A	US 5 187 025 A (KELLAND JAMES W ET AL) 16. Februar 1993 (1993-02-16) Spalte 3, Zeile 1 - Zeile 15; Abbildung 2 -----	1

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01890

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
JP 09289029 A	04-11-1997	KEINE	
EP 0918362 A	26-05-1999	JP 11154522 A	08-06-1999
GB 2323700 A	30-09-1998	DE 19713250 A	15-10-1998
		CA 2233440 A	29-09-1998
WO 9425995 A	10-11-1994	DE 4314745 C	08-12-1994
		DE 59404537 D	11-12-1997
		EP 0698300 A	28-02-1996
		JP 8509571 T	08-10-1996
		US 5733678 A	31-03-1998
WO 9833225 A	30-07-1998	DE 19703214 C	05-11-1998
		AU 6617298 A	18-08-1998
		EP 0966770 A	29-12-1999
DE 19823880 A	10-12-1998	FR 2764122 A	04-12-1998
		GB 2326017 A	09-12-1998
		SE 9801942 A	04-12-1998
JP 07065847 A	10-03-1995	KEINE	
EP 0331128 A	06-09-1989	US 4786568 A	22-11-1988
		CA 1309132 A	20-10-1992
		DK 95589 A	02-09-1989
		JP 1283771 A	15-11-1989
		JP 2842606 B	06-01-1999
		US 4845840 A	11-07-1989
JP 59046767 A	16-03-1984	KEINE	
JP 09097619 A	08-04-1997	KEINE	
US 5187025 A	16-02-1993	KEINE	